

INTERNATIONAL PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

| | |
|--|---|
| Date of mailing: 23 November 2000 (23.11.00) | |
| International application No.: PCT/EP00/03928 | Applicant's or agent's file reference: LeA33705-WO |
| International filing date: 02 May 2000 (02.05.00) | Priority date: 12 May 1999 (12.05.99) |
| Applicant: KATHER, Kristian et al | |

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:
27 September 2000 (27.09.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

| | |
|---|---|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Authorized officer: J. Zahra Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |
|---|---|

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

| | | |
|---|---|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts LeA33705-W0 | WEITERES VORGEHEN | siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5 |
| Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/ 03928 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 02/05/2000 | (Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 12/05/1999 |
| Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al. | | |

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbaren **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichten: Abb. Nr. _____

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07D409/12 C07D333/54 C07D333/62 C07D333/72 C07D333/78
C07D333/80 A01N43/68

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| A | DE 197 44 232 A (BAYER AG) 8. April 1999 (1999-04-08) in der Anmeldung erwähnt Anspruch 1; Beispiele | 1,9 |
| A | US 4 740 230 A (TAKEMATSU TETSUO ET AL) 26. April 1988 (1988-04-26) Anspruch 1; Beispiele | 1,9 |
| A | EP 0 283 522 A (IDEMITSU KOSAN CO) 28. September 1988 (1988-09-28) Anspruch 1 | 1,9 |

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

G Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. August 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

11/08/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

De Jong, B

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/03928

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|---|--|
| DE 19744232 A | 08-04-1999 | AU 9628098 A WO 9918100 A EP 1021441 A | 27-04-1999 15-04-1999 26-07-2000 |
| US 4740230 A | 26-04-1988 | BR 8604394 A CA 1276020 A CN 1021330 B DE 3669159 D EP 0216259 A KR 8701392 B JP 1760224 C JP 4050311 B JP 63146876 A | 12-05-1987 06-11-1990 23-06-1993 05-04-1990 01-04-1987 25-07-1987 20-05-1993 13-08-1992 18-06-1988 |
| EP 0283522 A | 28-09-1988 | DE 3768257 D WO 8802368 A JP 7010861 B US 4932998 A | 04-04-1991 07-04-1988 08-02-1995 12-06-1990 |



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

| | | |
|---|---|--|
| Applicant's or agent's file reference LeA33705-WO | FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) | |
| International application No. PCT/EP00/03928 | International filing date (day/month/year) 02 May 2000 (02.05.00) | Priority date (day/month/year) 12 May 1999 (12.05.99) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07D 409/12, 333/54, 333/62, 333/72, 333/78, 333/80, A01N 43/68 | | |
| Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT | | |

| |
|---|
| <p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p> |
| <p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input checked="" type="checkbox"/> - Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p> |

| | |
|--|---|
| Date of submission of the demand 27 September 2000 (27.09.00) | Date of completion of this report 30 May 2001 (30.05.2001) |
| Name and mailing address of the IPEA/EP | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/03928

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

☒ the international application as originally filed.

☒ the description, pages 1-41, as originally filed,
pages _____, filed with the demand,
pages _____, filed with the letter of _____,
pages _____, filed with the letter of _____.

☒ the claims, Nos. 1-11, as originally filed,
Nos. _____, as amended under Article 19,
Nos. _____, filed with the demand,
Nos. _____, filed with the letter of _____,
Nos. _____, filed with the letter of _____.

☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
sheets/fig _____, filed with the demand,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages _____

☐ the claims, Nos. _____

☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/03928

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

| | | | |
|-------------------------------|--------|------|-----|
| Novelty (N) | Claims | 1-12 | YES |
| | Claims | | NO |
| Inventive step (IS) | Claims | 1-12 | YES |
| | Claims | | NO |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1-12 | YES |
| | Claims | | NO |

2. Citations and explanations

D1: US-A-4 740 230 (TAKEMATSU TETSUO et al.), 26 April 1988 (1988-04-26)

D2: EP-A-0 283 522 (IDEMITSU KOSAN CO), 28 September 1988 (1988-09-28)

The application discloses compounds of the general formula (I) (Claims 1-5) and a method for preparing them (Claim 6); the intermediate compounds of formula (II) (Claim 7) and a method for preparing them (Claim 8); a method for preventing undesired plant growth (Claim 9); the use of a compound of formula (I) (Claim 10); and a herbicide that contains a compound of formula (I) (Claim 11).

The claimed compounds of formula (I), like the herbicides described in documents D1 and D2, are 1,3,5-triazines with amino substituents on two carbon atoms which are opposite each other in the ring. In the claimed compounds of formula (I), one of the amino groups is bonded to a bicyclic system consisting of an aromatic five-membered ring onto which is condensed a non-aromatic ring with at least five members, said amino group being directly bonded to the non-aromatic ring. By contrast, the compounds described in documents D1 and D2 contain a bicyclic system consisting of one five-membered ring and one six-membered ring, the five-membered ring

THIS PAGE BLANK (USPTO)

being bonded to one of the amino substituents in the trizine system via an (optionally substituted) methylene unit.

In view of these structural differences, the compounds of formula (I) and the intermediate compounds of formula (II) can be considered novel (PCT Article 33(2)).

The problem addressed by the application was that of providing additional herbicidal substances.

The problem is solved by the claimed compounds of formula (I) as indicated in the description.

By virtue of the aforementioned structural differences, the compounds of formula (I) are representative of a class of compounds that were not previously used as herbicides.

The claimed compounds of formula (I) are therefore not obvious in the light of the closest prior art (documents D1 and D2), and can thus be considered inventive (PCT Article 33(3)).

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/EP 00/03928

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

Formula (V) on page 13 is not correctly shown. The NH_2 group on the left should be NR^1R^2 .

Contrary to the requirements of PCT Rule 5.1(a)(ii), the description does not cite documents D1 and D2 or indicate the relevant prior art disclosed therein.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/EP 00/03928

VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

Formula (V) in Claim 8 is not correctly shown. The NH_2 group on the left should be NR^1R^2 .

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 01 JUN 2001

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

T16


| | | |
|---|--|--|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 705-WO Lu | WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) | |
| Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/03928 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 02/05/2000 | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 12/05/1999 |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07D409/12 | | |
| Anmelder BAYER-AKTIENGESELLSCHAFT et al. | | |

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

| | |
|--|--|
| Datum der Einreichung des Antrags 27/09/2000 | Datum der Fertigstellung dieses Berichts 30.05.2001 |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465 | Bevollmächtigter Bediensteter Fritz, M Tel. Nr. +49 89 2399 2792 |



THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-41 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-11 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

| | | |
|--------------------------------|-----------------|------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche | 1-12 |
| | Nein: Ansprüche | |
| Erfinderische Tätigkeit (ET) | Ja: Ansprüche | 1-12 |
| | Nein: Ansprüche | |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (GA) | Ja: Ansprüche | 1-12 |
| | Nein: Ansprüche | |

**2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt**

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

D1: US-A-4 740 230 (TAKEMATSU TETSUO ET AL) 26. April 1988 (1988-04-26)

D2: EP-A-0 283 522 (IDEMITSU KOSAN CO) 28. September 1988 (1988-09-28)

Die vorliegende Anmeldung offenbart Verbindungen der allgemeinen, anmeldungsgemäßen Formel (I) (Ansprüche 1-5), ein Verfahren zu deren Herstellung (Anspruch 6), die Zwischenverbindungen (II) (Anspruch 7), ein Verfahren zu deren Herstellung (Anspruch 8), ein Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenbewuchs (Anspruch 9), die Verwendung von (I) (Anspruch 10) sowie ein herbizides Mittel, welches eine Verbindung (I) enthält (Anspruch 11).

Bei den anmeldungsgemäßen Verbindungen (I) handelt es sich, ebenso wie bei den in D1 und D2 beschriebenen Herbiziden, um 1,3,5-Triazine, die an zwei gegenüberliegenden Ring-C-Atomen Aminosubstituenten tragen.

In den anmeldungsgemäßen Verbindungen (I) ist eine der Aminogruppen an ein bicyclisches System, bestehend aus einem aromatischen Fünfring, an den ein nicht-aromatischer, mindestens 5-gliedriger Ring ankondensiert ist, gebunden, wobei besagte Aminogruppe direkt an den nicht-aromatischen Ring gebunden ist.

Im Gegensatz dazu enthalten die in D1 und D2 beschriebenen Verbindungen ein bicyclisches aromatisches System aus einem 5- und einem 6-Ring, wobei der 5-Ring über eine (gegebenenfalls substituierte) Methyleninheit an einen der Aminosubstituenten des Trizinsystems gebunden ist.

Aufgrund dieser strukturellen Unterschiede sind sowohl die Verbindungen (I) als auch die Intermediate (II) als neu anzusehen (Artikel 33(2) PCT).

Aufgabe der vorliegenden Anmeldung war es, weitere, herbizid wirkende Substanzen bereitzustellen.

Die anmeldungsgemäßen Verbindungen (I) lösen diese Aufgabe, wie aus der Beschreibung hervorgeht.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Aufgrund der oben erläuterten strukturellen Unterschiede werden die Verbindungen (I) als Vertreter einer Verbindungsklasse angesehen, die bisher nicht als Herbizide eingesetzt wurden.

Infolgedessen sind die anmeldungsgemäßen Verbindungen (I) gegenüber dem nächsten Stand der Technik (d.h. D1 und D2) nicht naheliegend, und eine erfinderische Tätigkeit im Sinne des Artikels 33(3) PCT wird anerkannt.

Zu Punkt VII

Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Auf Seite 13 der Beschreibung ist die Strukturformel (V) nicht korrekt dargestellt, d.h. die linksstehende NH_2 -Gruppe sollte durch " NR^1R^2 " ersetzt werden.

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in den Dokumenten D1-D2 offenbarte einschlägige Stand der Technik noch diese Dokumente angegeben.

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

In Anspruch 8 ist die Strukturformel (V) nicht korrekt dargestellt, d.h. die linksstehende NH_2 -Gruppe sollte durch " NR^1R^2 " ersetzt werden.

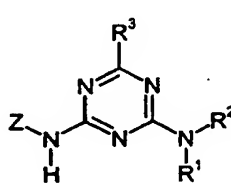
THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

| | | | |
|---|--|---|---|
| (51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C07D 409/12, 333/54, 333/62, 333/72, 333/78, 333/80, A01N 43/68 | | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/69854 |
| | | (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 23. November 2000 (23.11.00) | |
| (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/03928 | | (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). | |
| (22) Internationales Anmeldedatum: 2. Mai 2000 (02.05.00) | | | |
| (30) Prioritätsdaten: 199 21 883.8 12. Mai 1999 (12.05.99) DE | | (81) Bestimmungsstaaten: AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). | |
| (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). | | | |
| (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KATHER, Kristian [DE/DE]; Grabenstr. 21, D-40789 Monheim (DE). LEHR, Stefan [DE/DE]; Ricarda-Huch-Str. 38, D-40764 Langenfeld (DE). RIEBEL, Hans-Jochem [DE/DE]; Heimatstr. 1, D-56242 Selters (DE). VOIGT, Katharina [DE/DE]; Radstädter Weg 8, D-40789 Monheim (DE). DREWES, Mark, Wilhelm [DE/DE]; Goethestr. 38, D-40764 Langenfeld (DE). FEUCHT, Dieter [DE/DE]; Ackerweg 9, D-40789 Monheim (DE). PONTZEN, Rolf [DE/DE]; Am Kloster 69, D-42799 Leichlingen (DE). WETCHOLOWSKY, Ingo [DE/BR]; Cond. Estancia Marambaia, Rua Avare, 500, CEP-13280-000 Vinhedo, SP (BR). | | Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> | |
| (54) Title: SUBSTITUTED THIENOCYCLOALK(EN)YLAMINO-1,3,5-TRIAZINE | | | |
| (54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE THIENOCYCLOALK(EN)YLAMINO-1,3,5-TRIAZINE | | | |
|  | | | |
| (57) Abstract | | | |
| <p>The invention relates to novel substituted thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine of general formula (I), wherein Z, R¹, R² and R³ have the meaning cited in the description. The invention also relates to a method for producing said compounds and to their use as herbicides. The invention further relates to the intermediate products required for producing said compounds and to methods for the production of said intermediate products used in the preferred compounds.</p> | | | |

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft neue substituierte Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I), in welcher Z, R¹, R² und R³ die in der Beschreibung angegebene Bedeutung haben, sowie Verfahren zu ihrer Herstellung, ihre Verwendung als Herbizide und die zu ihrer Herstellung benötigten Zwischenprodukte einschließlich ihrer Herstellverfahren bei den bevorzugten Verbindungen.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

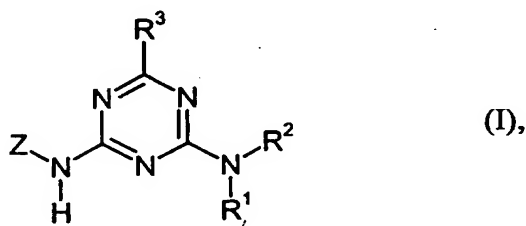
| | | | | | | | |
|----|------------------------------|----|-----------------------------------|----|---|----|--------------------------------|
| AL | Albanien | ES | Spanien | LS | Lesotho | SI | Slowenien |
| AM | Armenien | FI | Finnland | LT | Litauen | SK | Slowakei |
| AT | Österreich | FR | Frankreich | LU | Luxemburg | SN | Senegal |
| AU | Australien | GA | Gabun | LV | Letland | SZ | Swasiland |
| AZ | Aserbaidshan | GB | Vereinigtes Königreich | MC | Monaco | TD | Tschad |
| BA | Bosnien-Herzegowina | GE | Georgien | MD | Republik Moldau | TG | Togo |
| BB | Barbados | GH | Ghana | MG | Madagaskar | TJ | Tadschikistan |
| BE | Belgien | GN | Guinea | MK | Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan |
| BF | Burkina Faso | GR | Griechenland | | | TR | Türkei |
| BG | Bulgarien | HU | Ungarn | ML | Mali | TT | Trinidad und Tobago |
| BJ | Benin | IE | Irland | MN | Mongolei | UA | Ukraine |
| BR | Brasilien | IL | Israel | MR | Mauretanien | UG | Uganda |
| BY | Belarus | IS | Island | MW | Malawi | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| CA | Kanada | IT | Italien | MX | Mexiko | UZ | Usbekistan |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan | NE | Niger | VN | Vietnam |
| CG | Kongo | KE | Kenia | NL | Niederlande | YU | Jugoslawien |
| CH | Schweiz | KG | Kirgisistan | NO | Norwegen | ZW | Zimbabwe |
| CI | Côte d'Ivoire | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | NZ | Neuseeland | | |
| CM | Kamerun | | | PL | Polen | | |
| CN | China | KR | Republik Korea | PT | Portugal | | |
| CU | Kuba | KZ | Kasachstan | RO | Rumänien | | |
| CZ | Tschechische Republik | LC | St. Lucia | RU | Russische Föderation | | |
| DE | Deutschland | LI | Liechtenstein | SD | Sudan | | |
| DK | Dänemark | LK | Sri Lanka | SE | Schweden | | |
| EE | Estland | LR | Liberia | SG | Singapur | | |

Substituierte Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine

Die Erfindung betrifft neue substituierte Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine, Verfahren zu ihrer Herstellung einschließlich der neuen Zwischenprodukte und ihre Verwendung als Herbizide.

Eine Reihe von substituierten Thienylalkylamino-1,3,5-triazinen ist bereits aus der (Patent-)Literatur bekannt (vgl. WO-A-98/15537, WO-A-98/15539, DE-A-19744232). Diese Verbindungen haben jedoch bisher keine besondere Bedeutung erlangt. Substituierte Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine sind bisher überhaupt nicht bekannt geworden.

Es wurden nun die neuen substituierten Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I)



in welcher

R^1 für Wasserstoff oder für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht,

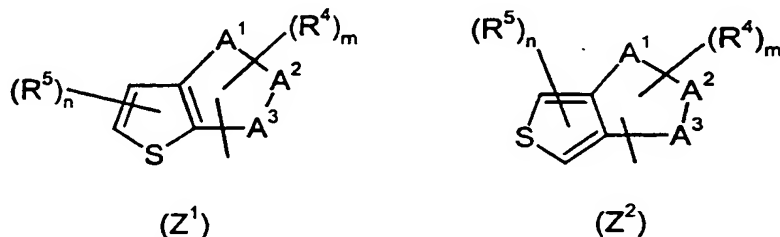
R^2 für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy carbonyl oder Alkylaminocarbonyl steht,

oder die Gruppierung $N(R^1R^2)$ auch für Dialkylaminoalkylidenamino steht,

R^3 für Wasserstoff, für Halogen, für gegebenenfalls substituiertes Alkyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkylcarbonyl, Alkoxy carbonyl,

Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkenyl oder Alkynyl, oder für gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl steht, und

Z für eine der nachstehenden Thienocycloalk(en)yl-Gruppierungen steht



worin

m für die Zahlen 0, 1, 2, 3 oder 4 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A¹ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) steht,

A² für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) steht,

A³ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) steht,

- mit der Maßgabe, daß von den Gruppierungen A¹, A², A³ wenigstens eine für Alkandiyl steht und nicht zwei benachbarte Gruppen gleichzeitig für S oder O stehen -

R⁴ für Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino, Alkylsulfonylamino, Alkenyl, Alkinyl, Alkenylcarbonyl, Alkinylcarbonyl, Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl steht, und

R⁵ für Nitro, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino, Alkylsulfonylamino, Alkenyl, Alkinyl, Alkenylcarbonyl, Alkinylcarbonyl, Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl steht,

gefunden.

Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppierungen, wie Alkyl, Alkandiy, Alkenyl oder Alkinyl, sind – auch in Verknüpfungen mit Heteroatomen, wie in Alkoxy – soweit möglich jeweils geradkettig oder verzweigt.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitution die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

Bevorzugte Substituenten bzw. Bereiche der in den oben und nachstehend aufgeführten Formeln vorhandenen Reste werden im folgenden definiert.

m steht bevorzugt für die Zahlen 0, 1 oder 2.

A¹ steht bevorzugt für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiy (Alkylen) mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen.

A² steht bevorzugt für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen.

A³ steht bevorzugt für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen.

Von den Gruppierungen A¹, A², A³ steht bei den bevorzugten Verbindungen wenigstens eine für Alkandiyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, und zwei benachbarte Gruppen stehen nicht gleichzeitig für S oder O.

R¹ steht bevorzugt für Wasserstoff oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

R² steht bevorzugt für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl oder Alkylaminocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen.

Die Gruppierung N(R¹R²) steht bevorzugt auch für Dialkylaminoalkyliden-amino mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen bzw. Alkylidengruppen.

R³ steht bevorzugt für Wasserstoff, für Halogen, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, Hydroxy, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkylthio substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 2

bis 6 Kohlenstoffatomen, oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen.

R⁴ steht bevorzugt für Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino oder Alkylsulfonylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano oder Halogen substituiertes Alkenyl, Alkinyl, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkinylgruppen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil.

R⁵ steht bevorzugt für Nitro, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino oder Alkylsulfonylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano oder Halogen substituiertes Alkenyl, Alkinyl, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkinylgruppen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil.

- A¹ steht besonders bevorzugt für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS-, Methylen, Dimethylen oder Trimethylen.
- A² steht besonders bevorzugt für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS-, Methylen, Dimethylen oder Trimethylen.
- A³ steht besonders bevorzugt für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS-, Methylen, Dimethylen oder Trimethylen.

Von den Gruppierungen A¹, A², A³ steht bei den bevorzugten Verbindungen wenigstens eine für Methylen, Dimethylen oder Trimethylen, und zwei benachbarte Gruppen stehen nicht gleichzeitig für S oder O.

- R¹ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl.
- R² steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl.

Die Gruppierung N(R¹R²) steht besonders bevorzugt auch für Dimethylaminomethylenamino oder Diethylaminomethylenamino.

- R³ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, für Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes

Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl.

R⁴ steht besonders bevorzugt für Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, , Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl, Ethenylcarbonyl, Propenylcarbonyl, Butenylcarbonyl, Ethinylcarbonyl, Propinylcarbonyl oder Butinylcarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Benzoyl oder Benzyl.

R⁵ steht besonders bevorzugt für Nitro, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch

Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, , Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyrylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl, Ethenylcarbonyl, Propenylcarbonyl, Butenylcarbonyl, Ethinylcarbonyl, Propinylcarbonyl oder Butinylcarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Benzoyl oder Benzyl.

A¹ steht ganz besonders bevorzugt für Methylen oder Dimethylen.

A² steht ganz besonders bevorzugt für Methylen oder Dimethylen.

A³ steht ganz besonders bevorzugt für Methylen oder Dimethylen.

R¹ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff.

R² steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl.

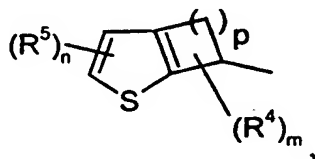
Die Gruppierung $N(R^1R^2)$ steht ganz besonders bevorzugt auch für Dimethylaminomethylenamino.

R^3 steht ganz besonders bevorzugt für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl.

R^4 steht ganz besonders bevorzugt für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy.

R^5 steht ganz besonders bevorzugt für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy.

In der allgemeinen Formel (I) steht Z am meisten bevorzugt für



wobei

p für 2, 3 oder 4 steht und n , m , R^4 und R^5 wie oben angegeben definiert sind.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander; also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

Erfindungsgemäß bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen eine Kombination der vorstehend als bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

Erfindungsgemäß besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

Erfindungsgemäß ganz besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen eine Kombination der vorstehend als ganz besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

Erfindungsgemäß am meisten bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen Z die als am meisten bevorzugt angegebene Bedeutung hat.

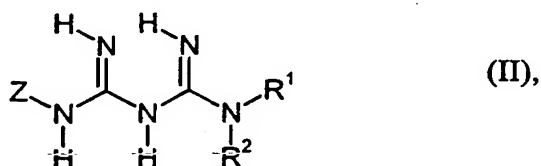
Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste, wie Alkyl, Alkandiyyl oder Alkenyl, sind – auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie in Alkoxy – soweit möglich jeweils geradkettig oder verzweigt.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitution die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) enthalten gegebenenfalls ein asymmetrisch substituiertes Kohlenstoffatom und können dann in verschiedenen enantiomeren (R- und S- konfigurierten Formen) bzw. diastereomeren Formen vorliegen. Die Erfindung betrifft sowohl die verschiedenen möglichen einzelnen enantiomeren bzw. stereoisomeren Formen der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) wie auch die Gemische dieser isomeren Verbindungen.

Die neuen substituierten Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I) weisen interessante biologische Eigenschaften auf. Sie zeichnen sich insbesondere durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

Man erhält die neuen substituierten Thienocycloalk(en)ylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I), wenn man Biguanide der allgemeinen Formel (II)

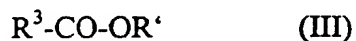


in welcher

R^1 , R^2 und Z die oben angegebene Bedeutung haben,

– und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (II) –

mit Alkoxycarbonylverbindungen der allgemeinen Formel (III)



in welcher

R^3 die oben angegebene Bedeutung hat und

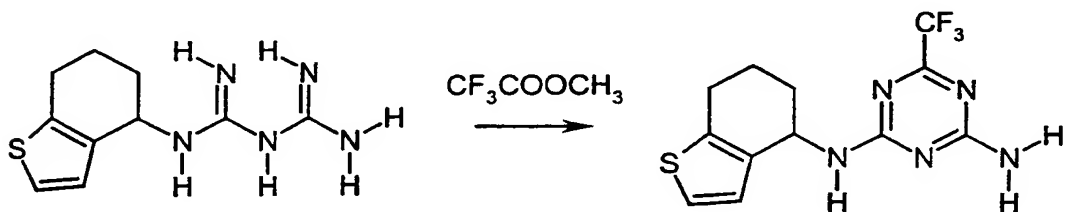
R^4 für Alkyl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt

und gegebenenfalls an den so erhaltenen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) im Rahmen der Substituentendefinition weitere Umwandlungen nach üblichen Methoden durchführt.

Die Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können nach üblichen Methoden in andere Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß obiger Substituentendefinition umgewandelt werden, beispielsweise durch Umsetzung von Verbindungen der Formel (I), in welcher R^2 für Wasserstoff steht, mit Acylierungsmitteln, wie z.B. Acetylchlorid, Acetanhydrid, Propionsäurechlorid, Propionsäureanhydrid, Chlorameisensäuremethylester oder Chlorameisensäureethylester (bei R^2 z.B. Einführung von COCH_3 -, COC_2H_5 -, COOCH_3 -, COOC_2H_5 -Gruppen für ein Wasserstoffatom).

Verwendet man beispielsweise 1-(4,5,6,7-Tetrahydro-benzo[b]thiophen-4-yl)-biguanid und Trifluoressigsäuremethylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Biguanide sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der allgemeinen Formel (II) haben R^1 , R^2 und Z vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 , R^2 und Z angegeben worden sind.

Geeignete Säureaddukte von Verbindungen der Formel (II) sind deren Additionsprodukte mit Protonensäuren, wie z.B. mit Chlorwasserstoff (Hydrogenchlorid), Bromwasserstoff (Hydrogenbromid), Schwefelsäure, Methansulfonsäure, Benzolsulfonsäure und p-Toluolsulfonsäure.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Man erhält die neuen Biguanide der allgemeinen Formel (II), wenn man Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (IV)

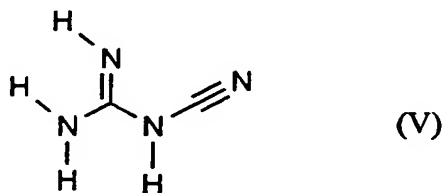


in welcher

Z die oben angegebene Bedeutung hat,

- und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (IV), wie z.B. die Hydrochloride -

mit Cyanoguanidin („Dicyandiamid“) der Formel (V)



gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels, wie z.B. Hydrogenchlorid, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. n-Decan oder 1,2-Dichlor-benzol, bei Temperaturen zwischen 100°C und 200°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die Biguanide der allgemeinen Formel (II) können nach ihrer Herstellung auch ohne Zwischenisolierung direkt zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) nach dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt werden (vgl. die Herstellungsbeispiele)

Die als Vorprodukte benötigten Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Org. Chem. 18 (1953), 1511-1515; JP-A-03223277 – zitiert in Chem. Abstracts 1992:128652 bzw. 116:128652).

Man erhält die Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (IV), wenn man entsprechende cyclische Ketone (einer der Reste A¹, A² oder A³ steht dann für -CO-) mit Formamid bei Temperaturen zwischen 140°C und 190°C umsetzt und die resultierende Formylaminoverbindung anschließend durch Erhitzen mit wässriger Salzsäure hydrolysiert (vgl. J. Org. Chem. 18 (1953), 1511-1515), oder wenn man die entsprechenden cyclischen Ketone zunächst durch Umsetzung mit Hydroxylamin-Hydrochlorid, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Pyridin, bei Temperaturen zwischen 0°C und 50°C in entsprechende Oxime überführt und diese mit einem Reduktionsmittel, wie z.B. Natriumborhydrid, in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels, wie z.B. Titan(IV)-chlorid, und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. 1,2-Dimethoxyethan, bei Temperaturen zwischen -20°C und +50°C umsetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die entsprechenden cyclischen Ketone sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Chem. Soc. 1953, 1837-1842; J. Heterocycl. Chem. 2 (1965), 44-48; loc. cit. 17 (1980), 87-92; loc. cit. 29 (1992), 1213-1217; J. Pharm. Sci. 52 (1963), 898-901; US-A-3301874).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Alkoxycarbonylverbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der allgemeinen

Formel (III) hat R^3 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^3 angegeben worden ist; R' steht vorzugsweise für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind bekannte Syntheschemikalien.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) wird gegebenenfalls unter Verwendung eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als Reaktionshilfsmittel kommen im allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säureakzeptoren in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall- -acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder -alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-amid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium- oder Kalium- -methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-butanolat; weiterhin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo[2.2.2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4.3.0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]-undec-7-en (DBU).

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) wird gegebenenfalls unter Verwendung eines Verdünnungsmittels durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen vor allem inerte organische Lösungsmittel

in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-ke-ton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether, Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, das erfindungsgemäße Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Auf-

arbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera, Aegilops, Phalaris.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung, z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die erfindungsgemäßen Wirkstoffe zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen sowie zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) zeigen starke herbizide Wirksamkeit und ein breites Wirkungsspektrum bei Anwendung auf dem Boden und auf oberirdische Pflanzenteile. Sie eignen sich in gewissem Umfang auch zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen, sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum-erzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum-erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykoether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfit-ablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-farbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

Acetochlor, Acifluorfen(-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim(-sodium), Ametryne, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, Azimsulfuron, Benazolin(-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron(-methyl), Bentazon, Benzobicyclon, Benzofenap, Benzoylprop(-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispyribac(-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone(-ethyl), Chlormethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron(-ethyl), Chlornitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cinidon(-ethyl), Cinmethylin, Cinosulfuron, Clefoxydim, Clethodim, Clodinafop(-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron(-methyl), Cloransulam(-methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cybutryne, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalofop(-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Desmedipham, Diallylate, Dicamba, Diclofop(-methyl), Diclosulam, Diethatyl(-ethyl), Difenzoquat, Diflufenican, Diflufenzopyr, Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethenamid, Dimexyflam, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron, Dymron, Epropodan, EPTC, Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron(-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen, Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop(-P-ethyl), Fentrazamide, Flamprop(-isopropyl), Flamprop(-isopropyl-L), Flamprop(-

methyl), Flazasulfuron, Florasulam, Fluazifop(-P-butyl), Fluazolate, Flucarbazone, Flufenacet, Flumetsulam, Flumiclorac(-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Flumetsulam, Fluometuron, Fluorochloridone, Fluoroglycofen(-ethyl), Flupoxam, Flupropacil, Flurpysulfuron(-methyl, -sodium), Flurenol(-butyl), Fluridone, Fluroxypyr(-methyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet(-methyl), Fluthiamide, Fomesafen, Glufosinate(-ammonium), Glyphosate(-isopropylammonium), Halosafen, Haloxyfop(-ethoxyethyl), Haloxyfop(-P-methyl), Hexazinone, Imazamethabenz(-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapic, Imazapyr, Imazaquin, Imazethapyr, Imazosulfuron, Iodosulfuron(-methyl, -sodium), Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron, Isoxaben, Isoxachlortole, Isoxaflutole, Isoxapyrifop, Lactofen, Lenacil, Linuron, MCPA, MCPP, Mefenacet, Mesotrione, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Metobromuron, (alpha-)Metolachlor, Metosulam, Metoxuron, Metribuzin, Metsulfuron(-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxadiazon, Oxasulfuron, Oxaziclomefone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendimethalin, Pendralin, Pentoxazone, Phenmedipham, Piperophos, Pretilachlor, Primsulfuron(-methyl), Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor, Propyzamide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyraflufen(-ethyl), Pyrazolate, Pyrazosulfuron(-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyriminobac(-methyl), Pyriothiobac(-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop(-P-ethyl), Quizalofop(-P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn, Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron(-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tebuthiuron, Tepraloxym, Terbutylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thifensulfuron(-methyl), Thiobencarb, Tiocarbazil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron(-methyl), Triclopyr, Tri-diphane, Trifluralin und Triflursulfuron.

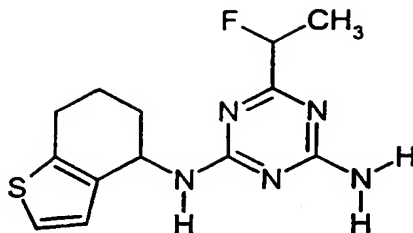
Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstruktur-verbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingebracht werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:Beispiel 1

(Verfahren mit integrierter Herstellung von Ausgangsstoff der Formel (II))

Eine Mischung aus 3,5 g (18,4 mMol) 4,5,6,7-Tetrahydrobenzo[b]thiophen-4-ylamin-Hydrochlorid und 1,6 g (18,4 mMol) Cyanoguanidin wird zwei Stunden auf 150°C erhitzt, dann im Aceton-Trockeneisbad abgeschreckt und mit Diethylether verrührt. Der erhaltene kristalline Feststoff wird durch Filtration abgetrennt und in 50 ml Methanol gelöst. Die Lösung wird mit 6,6 g (46,7 mMol) Natriumsulfat versetzt und bei Raumtemperatur (ca. 20°C) werden anschließend nacheinander 1,4 g (13,3 mMol) 2-Fluor-propansäure-methylester und 2,1 g (12,1 mMol) Natriummethylat dazu gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 20 Stunden bei Raumtemperatur gerührt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der Rückstand wird zwischen Wasser und Dichlormethan verteilt, die organische Phase abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt und der Rückstand säulenchromatographisch (Kieselgel, Essigsäureethylester/Hexan, Vol.: 20:80) gereinigt.

Man erhält 0,84 g (16 % der Theorie) 2-Amino-4-(1-fluor-ethyl)-6-(4,5,6,7-tetrahydrobenzo[b]thiophen-4-yl-amino)-1,3,5-triazin als hellgelbes Öl.

logP = 4,26 ^{a)}

Analog zu Beispiel 1 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung des erfindungsgemäßen Herstellungsverfahrens können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (I) hergestellt werden.

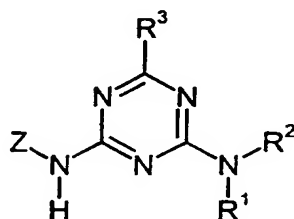
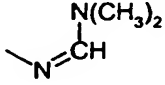
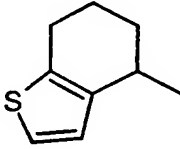
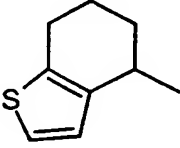
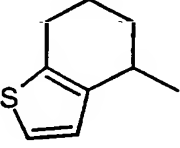
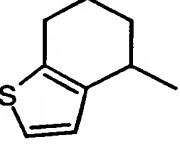
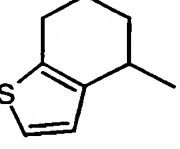
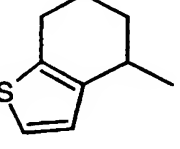
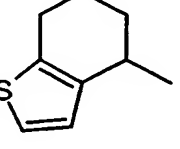
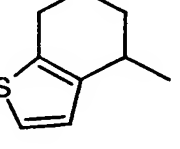
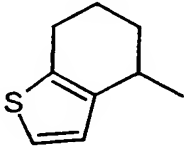
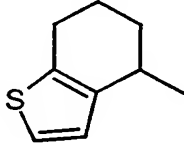
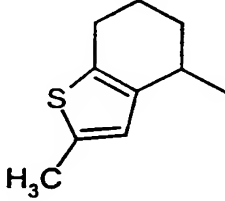
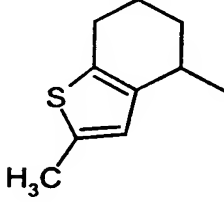
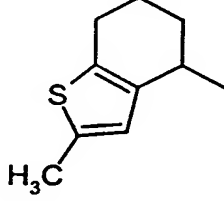
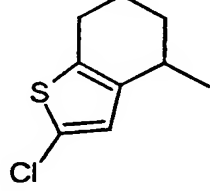
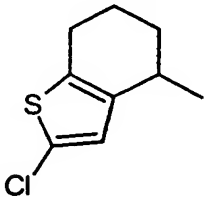
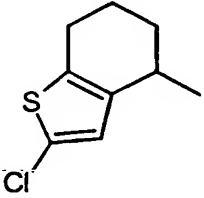
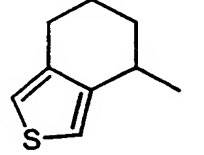
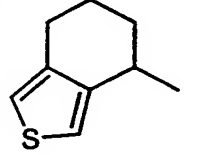
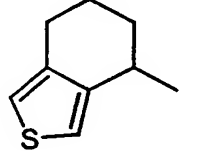
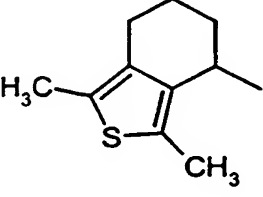
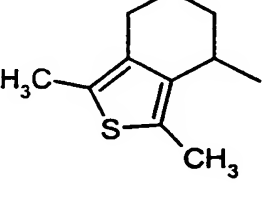


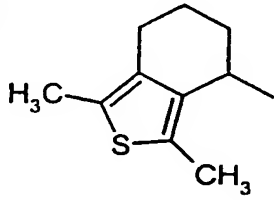
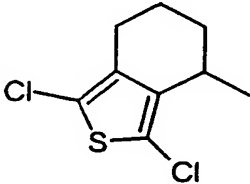
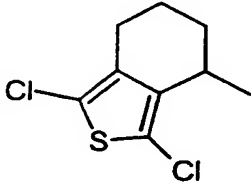
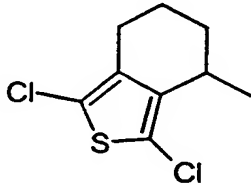
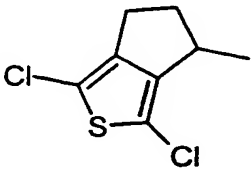
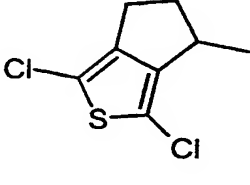

Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

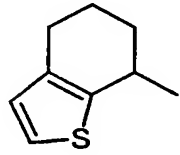
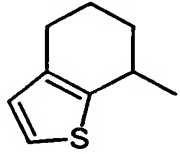
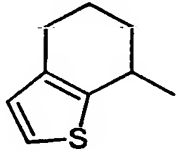
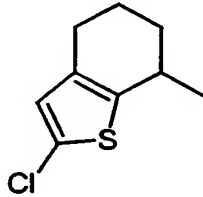
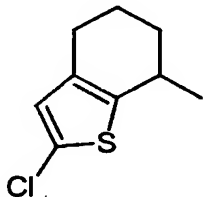
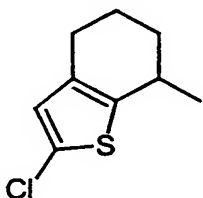
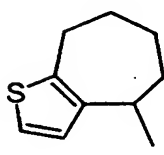
| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|--------------------------------------|-----------------------------------|---|---------------------------|
| 2 | - | NR ¹ R ² : | CHFCH ₃ | | |
| 3 | H | -CO-CH ₃ | CHFCH ₃ | | |
| 4 | H | -CO-C ₂ H ₅ | CHFCH ₃ | | |
| 5 | H | H | CF(CH ₃) ₂ | | logP = 1,75 ^{a)} |

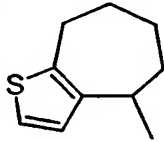
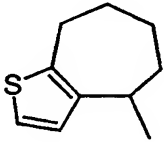
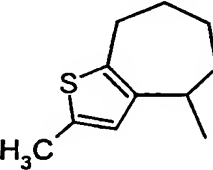
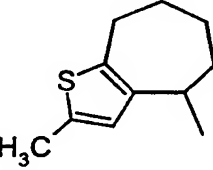
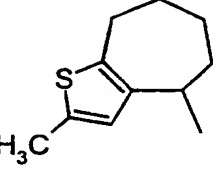
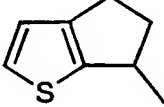
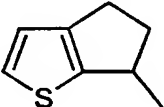
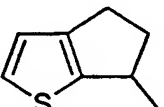
| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|---|-----------------------------------|--|---------------------------|
| 6 | - | NR ¹ R ² :  | CF(CH ₃) ₂ |  | logP = 2,67 ^{b)} |
| 7 | H | -CO-CH ₃ | CF(CH ₃) ₂ |  | logP = 2,66 ^{a)} |
| 8 | H | -CO-C ₂ H ₅ | CF(CH ₃) ₂ |  | logP = 2,93 ^{a)} |
| 9 | H | H | CHCl ₂ |  | |
| 10 | H | H | CF ₂ Cl |  | logP = 3,01 ^{a)} |
| 11 | H | H | C ₂ F ₅ |  | |
| 12 | H | H | CH ₂ OCH ₃ |  | |
| 13 | H | H | n-C ₃ H ₇ |  | logP = 1,61 ^{a)} |

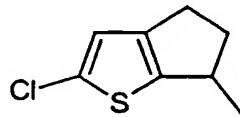
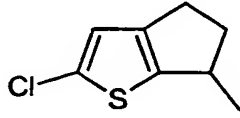
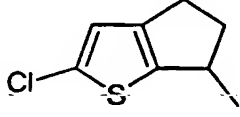
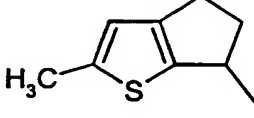
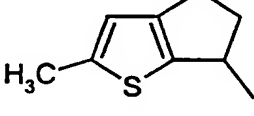
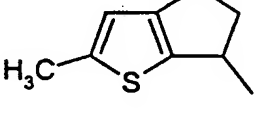
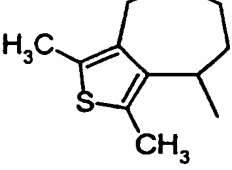
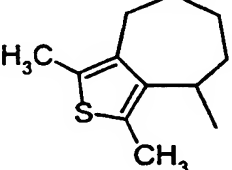
| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|---------------------------|
| 14 | H | H | i-C ₃ H ₇ |  | |
| 15 | H | H | CF ₃ |  | |
| 16 | H | H | CF ₃ |  | logP = 3,27 ^{a)} |
| 17 | H | H | CHFCH ₃ |  | logP = 1,97 ^{a)} |
| 18 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | logP = 2,03 ^{a)} |
| 19 | H | H | CF ₃ |  | |

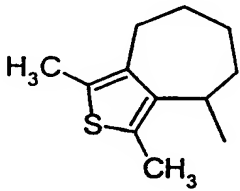
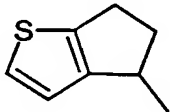
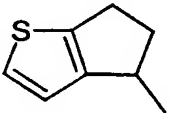
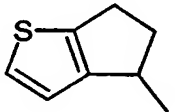
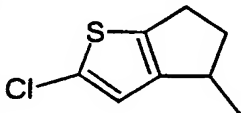
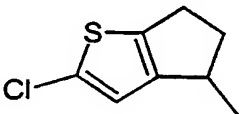
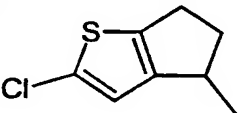
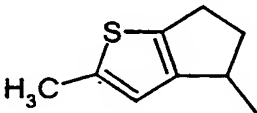
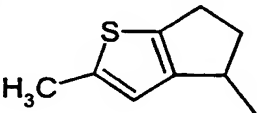
| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|---------------------------|
| 20 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 21 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 22 | H | H | CF ₃ |  | |
| 23 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 24 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 25 | H | H | CF ₃ |  | |
| 26 | H | H | CHFCH ₃ |  | logP = 2,21 ^{a)} |

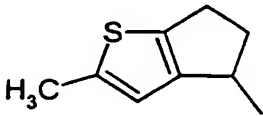
| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 27 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 28 | H | H | CF ₃ |  | |
| 29 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 30 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 31 | H | H | CF ₃ |  | |
| 32 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 33 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |

| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 34 | H | H | CF ₃ |  | |
| 35 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 36 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 37 | H | H | CF ₃ |  | |
| 38 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 39 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 40 | H | H | CF ₃ |  | |

| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|----------------------------|
| 41 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 42 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 43 | H | H | CF ₃ |  | logP = 3,47 ^a) |
| 44 | H | H | CHFCH ₃ |  | logP = 2,16 ^a) |
| 45 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 46 | H | H | CF ₃ |  | |
| 47 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 48 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |

| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|---------------------------|
| 49 | H | H | CF ₃ |  | |
| 50 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 51 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 52 | H | H | CF ₃ |  | |
| 53 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 54 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 55 | H | H | CF ₃ |  | |
| 56 | H | H | CHFCH ₃ |  | logP = 2,47 ^{a)} |

| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 57 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 58 | H | H | CF ₃ |  | |
| 59 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 60 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 61 | H | H | CF ₃ |  | |
| 62 | H | H | CHFCH ₃ |  | |
| 63 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |
| 64 | H | H | CF ₃ |  | |
| 65 | H | H | CHFCH ₃ |  | |

| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Z | Physikal. Daten |
|--------------|----------------|----------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 66 | H | H | CF(CH ₃) ₂ |  | |

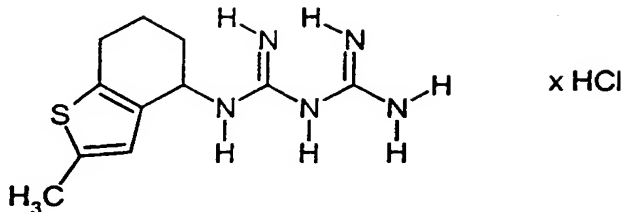
Die Bestimmung der in Beispiel 1 und in Tabelle 1 angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

(a) Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1% wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10% Acetonitril bis 90% Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit a) markiert.

(b) Eluenten für die Bestimmung im neutralen Bereich: 0,01-molare wässrige Phosphatpuffer-Lösung, Acetonitril; linearer Gradient von 10% Acetonitril bis 90% Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit b) markiert.

Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel II-1

Eine Mischung aus 24,9 g (0,122 Mol) 2-Methyl-4,5,6,7-tetrahydrobenzo[*b*]thiophen-4-yl-amin-Hydrochlorid und 10,3 g (0,122 Mol) Cyanoguanidin wird eine Stunde auf 150°C erhitzt und anschließend im Aceton-Trockeneis-Bad abgeschreckt. Das Reaktionsgemisch wird bei -78°C mit Aceton verrührt und der erhaltene Feststoff wird abfiltriert, bei Zimmertemperatur mit Diethylether verrührt und erneut filtriert.

Man erhält 27,3 g (78 % der Theorie) 2-Methyl-4,5,6,7-tetrahydrobenzo[*b*]thiophen-4-yl-biguanid-Hydrochlorid als dunkelbraunen Feststoff (logP = 1,12 a.).

Analog zu Beispiel II-1 können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (II) hergestellt werden.

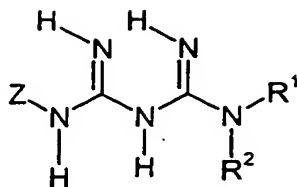
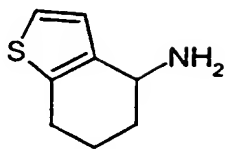
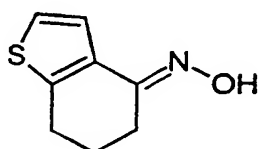


Tabelle 2: Beispiele für die Verbindungen der Formel (II)

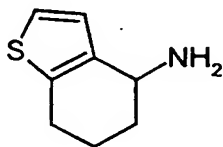
R¹ und R² stehen dabei jeweils für Wasserstoff

| Bsp.-Nr. | Z | Physikal. Daten |
|----------|---|-----------------|
| II-2 | | logP = 0,73 a.) |
| II-3 | | |
| II-4 | | |
| II-5 | | |

Ausgangsstoffe der Formel (IV):Beispiel IV-1Stufe 1

77,3 g (0,51 Mol) 6,7-Dihydro-benzo[*b*]thiophen-4(5*H*)-on werden zusammen mit 69,5 g (1,0 Mol) Hydroxylamin-Hydrochlorid in 600 ml Pyridin zwei Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Anschließend wird das Reaktionsgemisch in 1 Liter Wasser eingegossen, mit konz. Salzsäure ein pH-Wert von 1 eingestellt und mit Essigsäureethylester extrahiert. Die organische Extraktionslösung wird über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingengt, der als Feststoff erhaltene Rückstand mit Petrolether verrührt und durch Absaugen isoliert.

Man erhält 74,5 g (88 % der Theorie) 6,7-Dihydro-benzo[*b*]thiophen-4(5*H*)-oxim als 1:1-Mischung der *E/Z*-Isomeren.

Stufe 2

Eine Lösung von 8,4 g (50 mMol) 6,7-Dihydro-benzo[*b*]thiophen-4(5*H*)-oxim in 50 ml 1,2-Dimethoxy-ethan wird zu einer Mischung aus 20,0 g (105 mMol) Titan(IV)-chlorid und 8,0 g (210 mMol) Natriumborhydrid in 200 ml 1,2-Dimethoxy-ethan bei 0°C getropft. Das Reaktionsgemisch wird im Eis-Wasserbad belassen und ca. 20 Stunden gerührt. Zur Aufarbeitung wird auf Wasser gegossen und mit 25%iger Ammoniaklösung ein pH-Wert von 9 eingestellt. Der entstandene Niederschlag wird durch Filtration über Celite abgetrennt und das Filtrat mit Dichlormethan extrahiert. Die organische Extraktionslösung wird über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt.

Man erhält 4,5 g (59 % der Theorie) 4,5,6,7-Tetrahydro-benzo[*b*]thiophen-4-yl-amin als farbloses Öl.

Das Hydrochlorid der gemäß Beispiel IV-1 erhaltenen Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:

Eine Mischung aus 4,1 g (27 mMol) 4,5,6,7-Tetrahydro-benzo[*b*]thiophen-4-yl-amin, 4 ml konz. Salzsäure und 50 ml Methanol wird eine Stunde bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der Rückstand wird mit Diethylether verrührt und das kristallin erhaltene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 3,8 g (75 % der Theorie) 4,5,6,7-Tetrahydro-benzo[*b*]thiophen-4-yl-amin-Hydrochlorid als braunen Feststoff.

Anwendungsbeispiele:Beispiel A

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden so mit der Wirkstoffzubereitung besprüht, daß die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge pro Flächeneinheit ausgebracht wird. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 Liter Wasser pro Hektar die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge ausgebracht wird.

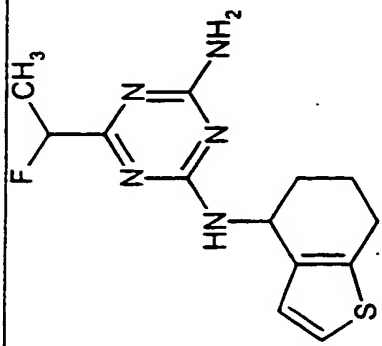
Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

| | | |
|-------|---|--|
| 0 % | = | keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle) |
| 100 % | = | totale Vernichtung |

In diesem Test zeigt beispielsweise die Verbindung gemäß Herstellungsbeispiel 1 starke Wirkung gegen Unkräuter.

Tabelle A: Pre emergence-Test/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr. | Aufwand- menge g ai./ha | Alopecurus | Setaria | Abutilon | Amaranthus | Galium |
|---|----------------------------|------------|---------|----------|------------|--------|
|  | | | | | | |
| (1) | 500 | 100 | 100 | 95 | 100 | 90 |

Beispiel B

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

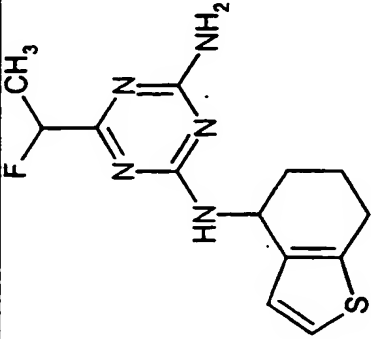
Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

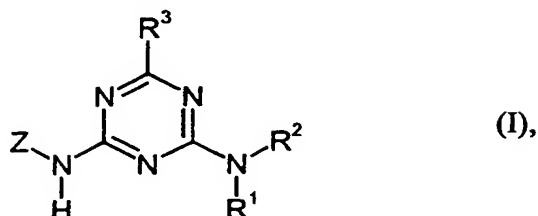
In diesem Test zeigt beispielsweise die Verbindung gemäß Herstellungsbeispiel 1 starke Wirkung gegen Unkräuter.

Tabelle B: Post emergence-Test/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr. | Aufwand- menge g ai./ha | Alopecurus | Setaria | Amaranthus | Sinapis | Xanthium |
|---|----------------------------|------------|---------|------------|---------|----------|
|  | | | | | | |
| (1) | 500 | 95 | 100 | 100 | 100 | 100 |

Patentansprüche

1. Verbindungen der allgemeinen Formel (I)



in welcher

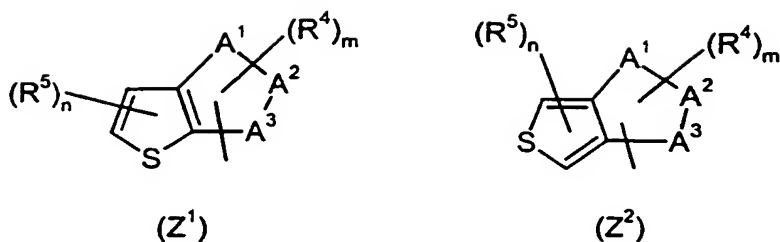
R^1 für Wasserstoff oder für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht,

R^2 für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylamino-carbonyl steht,

oder die Gruppierung $N(R^1R^2)$ auch für Dialkylaminoalkylidenamino steht,

R^3 für Wasserstoff, für Halogen, für gegebenenfalls substituiertes Alkyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkenyl oder Alkinyl, oder für gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl steht, und

Z für eine der nachstehenden Thienocycloalk(en)yl-Gruppierungen steht



worin

m für die Zahlen 0, 1, 2, 3 oder 4 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A¹ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) steht,

A² für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) steht,

A³ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) steht,

- mit der Maßgabe, daß von den Gruppierungen A¹, A², A³ wenigstens eine für Alkandiyl steht und nicht zwei benachbarte Gruppen gleichzeitig für S oder O stehen -

R⁴ für Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxy-carbonyl, Alkylthio, Alkyl-sulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkyl-carbonylamino, Alkoxy-carbonylamino, Alkylsulfonylamino,

Alkenyl, Alkynyl, Alkenylcarbonyl, Alkynylcarbonyl, Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl steht, und

R⁵ für Nitro, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino, Alkylsulfonylamino, Alkenyl, Alkynyl, Alkenylcarbonyl, Alkynylcarbonyl, Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl steht.

2. Verbindungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A¹ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht,

A² für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht,

A³ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS- oder Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht,

- mit der Maßgabe, daß von den Gruppierungen A¹, A², A³ wenigstens eine für Alkandiyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht und zwei benachbarte Gruppen nicht gleichzeitig für S oder O stehen -

R¹ für Wasserstoff oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R^2 für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C_1 - C_4 -Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl oder Alkylaminocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht, oder

die Gruppierung $N(R^1R^2)$ für Dialkylaminoalkylidenamino mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen bzw. Alkylidengruppen steht,

R^3 für Wasserstoff, für Halogen, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, Hydroxy, C_1 - C_4 -Alkoxy oder C_1 - C_4 -Alkylthio substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C_1 - C_4 -Alkoxy substituiertes Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R^4 für Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C_1 - C_4 -Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino oder Alkylsulfonylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano oder Halogen substituiertes Alkenyl, Alkynyl, Alkenylcarbonyl oder Alkynylcarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkynylgruppen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 -

C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil steht, und

R⁵ für Nitro, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxy-carbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Di-alkylamino, Alkylcarbonylamino, Alkoxy-carbonylamino oder Alkyl-sulfonylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano oder Halogen substituiertes Alkenyl, Alkinyl, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkinylgruppen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil steht.

3. Verbindungen gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß

A¹ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS-, Methylen, Dimethylen oder Trimethylen steht,

A² für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS-, Methylen, Dimethylen oder Trimethylen steht,

A³ für O (Sauerstoff), S (Schwefel), -CO-, -CS-, Methylen, Dimethylen oder Trimethylen steht,

- mit der Maßgabe, daß von den Gruppierungen A^1 , A^2 , A^3 wenigstens eine für Methylen, Dimethylen oder Trimethylen steht und zwei benachbarte Gruppen nicht gleichzeitig für S oder O stehen -

R^1 für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R^2 für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl steht, oder

die Gruppierung $N(R^1R^2)$ für Dimethylaminomethylenamino oder Diethylaminomethylenamino steht,

R^3 für Wasserstoff, für Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano,

Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht,

R⁴ für Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyrylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl, Ethenylcarbonyl, Propenylcarbonyl, Butenylcarbonyl, Ethinylcarbonyl, Propinylcarbonyl oder Butinylcarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Benzoyl oder Benzyl steht, und

R⁵ für Nitro, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl,

Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl, Ethenylcarbonyl, Propenylcarbonyl, Butenylcarbonyl, Ethinylcarbonyl, Propinylcarbonyl oder Butinylcarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Benzoyl oder Benzyl steht.

4. Verbindungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß

A¹ für Methylen oder Dimethylen steht,

A² für Methylen oder Dimethylen steht,

A³ für Methylen oder Dimethylen steht,

R¹ für Wasserstoff steht,

R² für Wasserstoff, für Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl steht, oder

die Gruppierung $N(R^1R^2)$ für Dimethylaminomethylenamino steht,

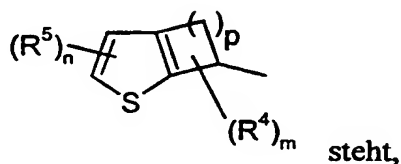
R^3 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R^4 für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy steht, und

R^5 für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy steht.

5. Verbindungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß

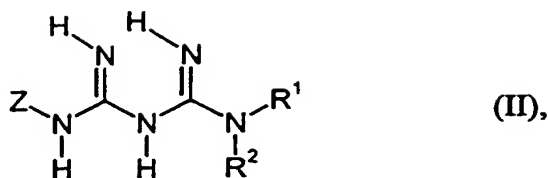
Z für



wobei

p für 2, 3 oder 4 steht und n, m, R^4 und R^5 die in einem der Ansprüche 1 bis 4 angegebene Bedeutung haben.

6. Verfahren zum Herstellen von substituierten Triazinen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß Biguanide der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R^1 , R^2 und Z die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene Bedeutung haben,

und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (II)

mit Alkoxycarbonylverbindungen der allgemeinen Formel (III)



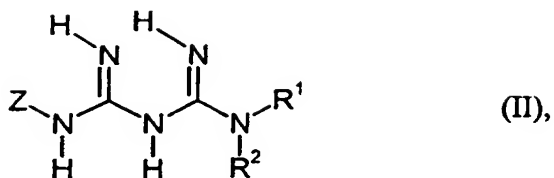
in welcher

R^3 die in einem der Ansprüche 1 bis 4 angegebene Bedeutung hat und

R^4 für Alkyl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt werden und gegebenenfalls an den so erhaltenen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) im Rahmen der Substituentendefinition weitere Umwandlungen nach üblichen Methoden durchgeführt werden.

7. Verbindungen der Formel (II)



dadurch gekennzeichnet, daß

R¹, R² und Z die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene Bedeutung haben,

sowie die Säureaddukte der Verbindungen der allgemeinen Formel (II).

8. Verfahren zum Herstellen von Verbindungen gemäß Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (IV)

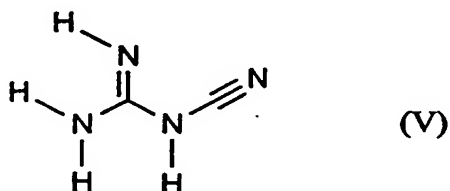


in welcher

Z die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene Bedeutung hat,

und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (IV)

mit Cyanoguanidin der Formel (V)



gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels bei Temperaturen zwischen 100°C und 200°C umgesetzt werden.

9. Verfahren zum Bekämpfen von unerwünschtem Pflanzenwuchs, dadurch gekennzeichnet, daß man mindestens eine Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 auf unerwünschte Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
10. Verwendung von mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 zum Bekämpfen von unerwünschten Pflanzen.
11. Herbizides Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 und üblichen Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/03928

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D409/12 C07D333/54 C07D333/62 C07D333/72 C07D333/78
C07D333/80 A01N43/68

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|--|-----------------------|
| A | DE 197 44 232 A (BAYER AG) 8 April 1999 (1999-04-08) cited in the application claim 1; examples | 1,9 |
| A | US 4 740 230 A (TAKEMATSU TETSUO ET AL) 26 April 1988 (1988-04-26) claim 1; examples | 1,9 |
| A | EP 0 283 522 A (IDEMITSU KOSAN CO) 28 September 1988 (1988-09-28) claim 1 | 1,9 |

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 August 2000

Date of mailing of the international search report

11/08/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De Jong, B

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/03928

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|---|--|
| DE 19744232 A | 08-04-1999 | AU 9628098 A WO 9918100 A EP 1021441 A | 27-04-1999 15-04-1999 26-07-2000 |
| US 4740230 A | 26-04-1988 | BR 8604394 A CA 1276020 A CN 1021330 B DE 3669159 D EP 0216259 A KR 8701392 B JP 1760224 C JP 4050311 B JP 63146876 A | 12-05-1987 06-11-1990 23-06-1993 05-04-1990 01-04-1987 25-07-1987 20-05-1993 13-08-1992 18-06-1988 |
| EP 0283522 A | 28-09-1988 | DE 3768257 D WO 8802368 A JP 7010861 B US 4932998 A | 04-04-1991 07-04-1988 08-02-1995 12-06-1990 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/03928

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07D409/12 C07D333/54 C07D333/62 C07D333/72 C07D333/78
C07D333/80 A01N43/68

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| A | DE 197 44 232 A (BAYER AG) 8. April 1999 (1999-04-08) in der Anmeldung erwähnt Anspruch 1; Beispiele --- | 1,9 |
| A | US 4 740 230 A (TAKEMATSU TETSUO ET AL) 26. April 1988 (1988-04-26) Anspruch 1; Beispiele --- | 1,9 |
| A | EP 0 283 522 A (IDEMITSU KOSAN CO) 28. September 1988 (1988-09-28) Anspruch 1 ----- | 1,9 |



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. August 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

11/08/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

De Jong, B

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/03928

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| DE 19744232 A | 08-04-1999 | AU 9628098 A | 27-04-1999 |
| | | WO 9918100 A | 15-04-1999 |
| | | EP 1021441 A | 26-07-2000 |
| US 4740230 A | 26-04-1988 | BR 8604394 A | 12-05-1987 |
| | | CA 1276020 A | 06-11-1990 |
| | | CN 1021330 B | 23-06-1993 |
| | | DE 3669159 D | 05-04-1990 |
| | | EP 0216259 A | 01-04-1987 |
| | | KR 8701392 B | 25-07-1987 |
| | | JP 1760224 C | 20-05-1993 |
| | | JP 4050311 B | 13-08-1992 |
| | | JP 63146876 A | 18-06-1988 |
| EP 0283522 A | 28-09-1988 | DE 3768257 D | 04-04-1991 |
| | | WO 8802368 A | 07-04-1988 |
| | | JP 7010861 B | 08-02-1995 |
| | | US 4932998 A | 12-06-1990 |